

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(21) Anmeldenummer: 86113390.8

(51) Int. Cl.⁴: **C 08 L 67/02**
C 08 K 3/36

(22) Anmeldetag: 29.09.86

(30) Priorität: 09.10.85 DE 3535985

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
13.05.87 Patentblatt 87/20

(84) Benannte Vertragsstaaten:
DE FR GB IT

(71) Anmelder: **BAYER AG**
Konzernverwaltung RP Patentabteilung
D-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

(72) Erfinder: **Zabrocki, Karl, Dr.**
Edelfalter 33
D-4044 Büttgen(DE)

(72) Erfinder: **Reinking, Klaus, Dr.**
Robert-Stolz-Strasse 16 b
D-5632 Wermelskirchen(DE)

(72) Erfinder: **Köhler, Karl-Heinz, Dr.**
Buschstrasse 165
D-4150 Krefeld(DE)

(72) Erfinder: **Lange, Ralf, Dr.**
Bethelstrasse 19
D-4150 Krefeld 1(DE)

(54) **Mineralgefüllte thermoplastische Polyester, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen.**

(57) Durch Zusatz von gemahlenem Quarz und/oder gemahlenem Cristobalit zur thermoplastischen Polyestern lassen sich Mischungen erhalten, welche die typischen Vorteile mineralgefüllter Polyester besitzen, ohne daß ein Zähigkeitsverlust eintritt.

EP 0 221 338 A1

5 BAYER AKTIENGESELLSCHAFT 5090 Leverkusen, Bayerwerk
Konzernverwaltung RP
Patentabteilung Pv/m-c

10

Mineralgefüllte thermoplastische Polyester, Verfahren zu
ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen

15

Die Erfindung betrifft thermoplastisch verarbeitbare Polyester, die gemahlenen Quarz und/oder gemahlenen Crystobalit als Füllstoff enthalten, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Formmassen, vornehmlich
20 für den Spritzguß.

Mit nicht faserförmigen Mineralien gefüllte thermoplastische Polyester sind als Werkstoffe in den Bereichen Elektrotechnik und Elektronik sowie im Fahrzeugbau zur Herstellung verschiedenster Formteile im Einsatz. Hauptvorteil derartiger Werkstoffe sind ihre hohe chemische und thermische Beständigkeit sowie die leichte Verarbeitbarkeit z.B. im Spritzgußverfahren.

30 Gegenüber ungefüllten und mit faserförmigen anorganischen Füllstoffen, z.B. Glasfasern, ausgerüsteten Polyestern zeichnen sich mineralgefüllte Polyester durch hervorragenden Oberflächenglanz, hohe Kriechstrom- und Lichtbogenfestigkeit sowie geringen Verzug beim Erstarren des Formteils aus.
35

Le A 24 068-EP

5 Als nicht faserförmige mineralische Füllstoffe wurden
schon die unterschiedlichsten Materialien verwendet, bei-
spielsweise Talk (DE-OS 20 51 331, 20 51 333), Dolomit
(EP-A 57 161), Novaculit (US-PS 37 40 341, 37 45 140,
40 18 738), Kaolin, Glimmer, Aluminiumoxid, Silicagel
10 (JP-PS 15 191/69).

Den genannten Vorteilen, die mineralgefüllte Polyester mit
sich bringen, steht der Nachteil des Zähigkeitsverlusts
gegenüber. Durch Verwendung möglichst feinteiliger Füll-
15 stoffe kann man zwar versuchen, diesen Effekt möglichst
gering zu halten; vermeiden ließ er sich bis jetzt jedoch
noch nicht.

In der US-PS 37 40 371 wird erklärt, weshalb Novaculit-
20 gefüllte Polyester bessere mechanische Eigenschaften als
mit anderen Mineralien gefüllte Polyester besitzen:
Erstens erlaubt die hydrophile Oberfläche einen festeren
Verbund zwischen Füllstoff und Polyester; zweitens werden
durch die Abwesenheit scharfer Kanten beim kryptokristal-
25 linen Novaculit Spannungsspitzen an der Grenzfläche Füll-
stoff/Polyester vermieden. Dies ist aber bei der spröden
Natur teilkristalliner Polyester besonders wichtig.

Es wurde nun überraschenderweise gefunden, daß man Poly-
30 ester erhält, welche die Vorteile mineralgefüllter Poly-
ester besitzen, ohne daß ein Zähigkeitsverlust eintritt,
wenn man als Füllstoff gemahlene Quarz und/oder gemahle-
nen Cristobalit einsetzt, dessen bzw. deren Teilchendurch-
messer einen bestimmten Wert nicht überschreitet.
35

Le A 24 068

- 5 Gegenstand der Erfindung sind also Mischungen aus
- A) 20 bis 80 Gew.-%, vorzugsweise 40 bis 75 Gew.-%, thermoplastischem Polyester,
- 10 B) 5 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 20 bis 50 Gew.-%, mineralischem Füllstoff,
- C) 0 bis 30 Gew.-%, vorzugsweise 0 oder 10 bis 25 Gew.-%, eines Acrylat- oder Butadienkautschuks,
- 15 D) 0 bis 30 Gew.-% Glasfasern und
- E) 0 bis 10 Gew.-% üblicher Hilfsstoffe,
- 20 wobei sich die Prozentangaben auf die Summe der Komponenten A bis E beziehen,
- dadurch gekennzeichnet, daß der Füllstoff B ein gemahlener Quarz und/oder ein gemahlener Cristobalit ist, wovon mindestens 50 Gew.-% einen Teilchendurchmesser von höchstens 2,5 µm besitzen.
- 25
- Thermoplastische Polyester A im Sinne der Erfindung sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder
- 30 ihren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. Dimethylestern oder Anhydriden) und aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Diolen.
- Bevorzugte Polyester A lassen sich aus Terephthalsäure
- 35 (oder ihren reaktionsfähigen Derivaten) und Alkandiolen

mit 2 bis 10 C-Atomen nach bekannten Methoden herstellen
5 (Kunststoff-Handbuch, Bd. VIII, S. 695 ff, Carl Hanser
Verlag, München 1973).

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate A enthalten mindestens
80, vorzugsweise mindestens 90 Mol-%, bezogen auf die Di-
10 carbonsäurekomponente, Terephthalsäurereste und mindestens
80, vorzugsweise mindestens 90 Mol-%, bezogen auf die
Diolkomponente, Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-
reste.

15 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate A können neben
Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol-% Reste anderer aro-
matischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis
14 C-Atomen und/oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4
bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure,
20 Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, Diphenyl-
4,4'-dicarbonsäure, Bernstein-, Adipin-, Sebacinsäure,
Cyclohexandiessigsäure.

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate A können neben
25 Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-resten bis zu 20 Mol-%
anderer aliphatischer Dirole mit 3 bis 21 C-Atomen oder
cycloaliphatischer Dirole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten,
z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3,
Neopentylglykol, Pentan-diol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclo-
30 hexan-dimethanol-1,4, 3-Methylpentandiol-2,4, 2-Methyl-
pentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3 und -1,5,
2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexan-
diol-2,5, 1,4-Di-(8-hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-
hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetra-
35

Le A 24 068 .

5 methyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(3- β -hydroxyethoxyphenyl)-
propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-OS
24 07 674, 24 07 776, 27 15 932).

10 Die Polyalkylenterephthalate A können durch Einbau rela-
tiv kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3-
oder 4-basischer Carbonsäuren, wie sie z.B. in der DE-OS
19 00 270 und der US-PS 36 92 744 beschrieben sind, ver-
zweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel
sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und
15 -propan und Pentaerythrit. Es ist ratsam, nicht mehr als
1 Mol-% des Verzweigungsmittels, bezogen auf die Säurekom-
ponente, zu verwenden.

20 Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate A, die
allein aus Terephthalsäure oder deren reaktionsfähigen
Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol
oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind.

25 Die als Komponente A vorzugsweise verwendeten Polyethylen-
terephthalate besitzen im allgemeinen eine Intrinsic-Vis-
kosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis
1,3 dl/g, insbesondere 0,6 bis 1,2 dl/g, und die als Kom-
ponente A verwendeten Polybutylenterephthalate besitzen
im allgemeinen eine Intrinsic-Viskosität von 0,7 bis
30 1,6 dl/g, vorzugsweise 0,8 bis 1,3 dl/g, insbesondere 0,8
bis 1,05 dl/g, jeweils gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol
(1:1 Gewichtsteile) bei 25°C.

35 Will man als Polyesterkomponente A Polyethylenterephtha-

le A 24 068

5 lat/Polybutylenterephthalat-Mischungen einsetzen, so wählt
 man vorzugsweise Polyethylenterephthalate mit einer In-
 trinsic-Viskosität von 0,65 bis 0,9 dl/g und Polybutylen-
 terephthalate mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,8 bis
 1,4 dl/g und Polyethylenterephthalat/Polybutylenterephtha-
 10 lat-Mischungsverhältnisse von 90:10 bis 10:90, vorzugswei-
 se von 30:70 bis 90:10 (bezogen auf Gewicht). Anstelle von
 Polyestermischungen lassen sich mit dem gleichen Erfolg
 auch die entsprechenden Copolyester einsetzen.

15 Im Zusammenhang mit dem gemahlenden Quarz B bedeutet
 "Quarz" nicht allgemein Siliciumdioxid; erfindungsgemäß
 werden mit "Quarz" gemäß der Bedeutung im engeren Sinne
 die beiden kristallinen Siliciumdioxid-Modifikationen α -
 und β -Quarz - nicht aber glasige oder amorphe, also nicht
 20 kristalline, Materialien - bezeichnet.

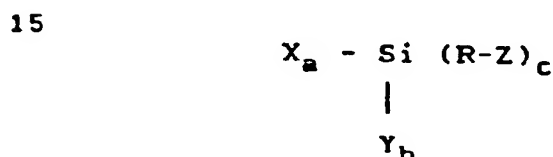
Die hochfeinen Produkte B erhält man durch Mahlen von ge-
 reinigten, gegebenenfalls thermisch umgewandelten, Quarz-
 und Cristobalitsanden, z.B. in Rohrmühlen, und anschlie-
 25 ßende Teilchengrößen-Fraktionierung, z.B. über Windsich-
 ter. Der gemahlene Quarz bzw. Cristobalit besteht zu min-
 destens 99 Gew.-%, vorzugsweise zu mindestens 99,5 Gew.-%,
 aus Siliciumdioxid. Er ist - im Gegensatz zu Novaculit -
 scharfkantig und splitterförmig. Mineralogisch gesehen,
 30 gehört er zu den kristallinen Siliciumdioxid-Modifika-
 tionen, nicht zu den kryptokristallinen, wie z.B. Flint,
 Novaculit und verschiedene Schmucksteine, vgl. z.B.
 Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie 21 (4.
 Aufl.), 440, Verlag Chemie, Weinheim 1982.

35 Ein weiteres Unterscheidungsmerkmal zwischen Quarz und
 Novaculit ist die bei Quarz etwa doppelt so hohe Pack-

Le A 24 068

5 ungsdichte (siehe hierzu Katz u. Milewski, Handbook of
Fillers and Reinforcements for Plastics, van Nostrand
1978, S. 144-154). Der erfindungsgemäß zu verwendende
Quarz besitzt vorzugsweise eine Packungsdichte von
mindestens 2,4 kg/dm³.

10 Der gemahlene Quarz bzw. Crystobalit B kann geschlichtet
oder ungeschlichtet eingesetzt werden; Schlichte führt zu
etwas höheren Zähigkeiten. Bevorzugte Schlichten sind
Silane der Formel



20 worin

X eine hydrolysierbare Gruppe, vorzugsweise C₁-C₄-Alk-
oxy oder ein H-Atom,

25 Y ein Wasserstoffatom oder einen einwertigen C₁-C₆-Koh-
lenwasserstoffrest, vorzugsweise Vinyl oder Phenyl,

R einen zweiwertigen C₁-C₂₀-Kohlenwasserstoffrest, vor-
zugsweise Propylen,

30 Z eine funktionelle Gruppe, vorzugsweise Amino, Glycid-
oxy, (Meth-)Acryloyl,

a, c eine ganze Zahl von 1 bis 3,

35 b Null, 1 oder 2,

Le A 24 068

5 $a + b + c = 4$

bedeuten.

Vorzugsweise sind $a = 3$, $b = 0$ und $c = 1$.

10 Als Schlichte bevorzugte Silane sind z.B.

- δ -Aminopropyltriethoxysilan,
- δ -Aminopropylphenyldimethoxysilan,
- 15 δ -Aminopropyltrimethoxysilan,
- δ -Glycidoxypropyltrimethoxysilan,
- δ -Methacryloxypropyltrimethoxysilan,
- δ -Vinyltrimethoxysilan.

20 Zwar kann man die Schlichte direkt beim Mischen der Komponenten A bis E zusetzen, jedoch ist es bevorzugt, sie während oder nach dem Mahlen auf die Quarz- bzw. Cristobalitoberfläche aufzubringen.

25 Als Komponente C zu verwendende Acrylat- und Butadienkautschuke werden in der Literatur beschrieben; vgl. z.B. DE-OS 16 94 173, 22 48 242, 23 10 034, 23 57 406, DE-PS 24 44 584 = US-PS 40 22 748, DE-OS 27 26 256 = US-PS 40 96 202, US-PS 38 08 180, EP-A 56 243.

30 Bevorzugte Kautschuke C besitzen eine Glasübergangstemperatur von unter -30°C und umfassen Copolymerisate - insbesondere Pfropfcopolymerisate - mit kautschukelastischen Eigenschaften, die im wesentlichen aus mindestens 2 der
 35 folgenden Monomeren erhältlich sind: Butadien-1,3, Styrol, Acrylnitril und (Meth)-Acrylsäureester mit 1 bis 18 C-Atomen in der Alkoholkomponente; also Polymerisate, wie sie z.B. in "Methoden der Organischen Chemie" (Houben-Weyl),
Le A 24 068

5 Bd. 14/1, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406
und in C.B. Bucknall, "Toughened Plastics", Appl. Science
Publishers, London 1977, beschrieben sind.

10 Besonders bevorzugte Polymerisate C sind Pffropfpolymeri-
sate.

Bevorzugte Pffropfpolymerisate C besitzen mittlere Teil-
chendurchmesser d_{50} von 0,05 bis 1, vorzugsweise von 0,1
bis 0,8, insbesondere von 0,2 bis 0,6 μm .

15 Der mittlere Teilchendurchmesser d_{50} ist der Durchmesser,
oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teil-
chen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugen-Messungen
(W. Scholtan, H. Lange, Kolloid. Z. und Z. Polymere 250
20 (1972), 782-796) oder mittels Elektronenmikroskopie und
anschließende Teilchenausählung (G. Kämpf, H. Schuster,
Angew. Makromolekulare Chemie 14, (1970), 111-129) be-
stimmt werden.

25 Die Pffropfpolymerisate C sind vernetzt und haben Gelgehal-
te von mindestens 50 Gew.-%, vorzugsweise mindestens
80 Gew.-% und insbesondere von mindestens 90 Gew.-%, be-
zogen auf Pffropfpolymerisat C.

30 Der Gelgehalt der vernetzten Dienkautschuke wird bei 25°C
in Toluol, der Gelgehalt der vernetzten Acrylatkautschuke
bei 25°C in Dimethylformamid bestimmt (M. Hoffmann, H.
Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme
Verlag Stuttgart 1977).

35 Bevorzugte Pffropfpolymerisate C sind Pffropfpolymerisate
von 15 bis 60, vorzugsweise 20 bis 50, insbesondere 25 bis
40 Gew.-% wenigstens eines Vinyl- oder Vinylidenmonomeren
Le A 24 068

5 aus der Reihe Styrol, α -Methylstyrol, Acrylnitril, C_1 - C_8 -
Alkylacrylat, C_1 - C_8 -Alkylmethacrylat, Hydroxy- C_2 - C_8 -alkyl-
(meth)acrylat, Epoxy- C_2 - C_8 -alkyl(meth)acrylat auf 40 bis
85, vorzugsweise 50 bis 80, insbesondere 60 bis 75 Gew.-%
teilchenförmigem vernetztem Dien- oder Acrylatkautschuk,
jeweils bezogen auf Pffropfpolymerisat C.

10

Bevorzugte Pffropfmonomere sind Methylmethacrylat sowie
Mischungen aus Styrol und Methylmethacrylat und Mischungen
aus Styrol und Acrylnitril.

15 Bevorzugte Dienkautschuke sind vernetzte Homo- und/oder
Copolymerisate aus konjugierten C_4 - C_6 -Dienen. Bevorzugtes
Dien ist Butandien-1,3. Die Diencopolymerisate können
neben den Dienresten bis zu 30 Gew.-%, bezogen auf Dien-
copolymerisat, Reste anderer ethylenisch ungesättigter
20 Monomere, wie z.B. Styrol, Acrylnitril, Ester der Acryl-
oder Methacrylsäure mit einwertigen C_1 - C_4 -Alkoholen, wie
z.B. Methylacrylat, Ethylacrylat, Methylmethacrylat,
Ethylmethacrylat, enthalten.

25 Die Herstellung der Dienkautschuk-Pffropfgrundlage und der
daraus hergestellten Pffropfpolymerisate wird z.B. in
"Methoden der Organischen Chemie" (Houben-Weyl), Bd. 14/1,
Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1961, S. 393-406, sowie in
Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie, 4. Auflage
30 Bd. 19, Verlag Chemie, Weinheim, 1981, S. 279 bis 284, be-
schrieben.

Bevorzugte Pffropfgrundlagen auf Basis Acrylatkautschuk
sind Polymerisate, die durch Polymerisation von C_1 - C_8 -
35

Le A 24 068

5 Alkylacrylaten erhalten werden. Die Polymerisate können auch Copolymerisate der Acrylsäureester mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf Copolymerisat, anderer Vinylmonomerer, wie Styrol, Acrylnitril, Methylmethacrylat, Vinyl-ester, Vinylether, sein.

10 Die Acrylatkautschuke sind vernetzt.

Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere mit mehr als einer copolymerisierbaren Doppelbindung sind Ester ungesättigter C_3 - C_{12} -Monocarbonsäuren und ungesättigter einwertiger C_2 - C_{12} -Alkohole oder gesättigter C_2 - C_{20} -Polyole mit 2 bis 4 OH-Gruppen, wie z.B. mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen, wie Trivinyl-, Triallylcyanurat und -isocyanurat; insbesondere Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat.

Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens drei copolymerisierbare ethylenisch ungesättigte Doppelbindungen aufweisen.

Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomeren Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Trivinylcyanurat, Tris-acryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole.

35

Le A 24 068

5 Die Menge der vernetzenden Monomeren beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf Kautschuk-Pfropfgrundlage.

10 Bei cyclischen, vernetzenden Monomeren mit mindestens drei ethylenisch ungesättigten Doppelbindungen ist es vorteilhaft, nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf Kautschuk-Pfropfgrundlage, zu verwenden.

15 Die erfindungsgemäßen Mischungen können Glasfasern D enthalten. Dadurch wird die Kerbschlagzähigkeit erhöht; mit zunehmendem Glasfasergehalt können aber die spezifischen Vorteile mineralgefüllter Polyester, wie Oberflächenglanz und Verzugsarmut, etwas in den Hintergrund treten.

20 Beispiele für übliche Hilfsstoffe E sind Nukleier- und Entformungsmittel, Stabilisatoren gegen thermischen und UV-Abbau, Pigmente, Farbstoffe etc.

25 Das Mischen der Komponenten kann auf üblichen Kunststoff verarbeitenden Aggregaten, wie Knetern oder Schneckenextrudern, durchgeführt werden. Die Mischbedingungen wird man so wählen, daß die Viskosität der polymeren Komponenten nicht oder kaum abfällt. Selbstverständlich sind auch Vorgemische der einzelnen Komponenten zu verwenden.

30 Weiterer Gegenstand der Erfindung ist also ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Mischungen durch Mischen der Komponenten, vorzugsweise bei Temperaturen von 250 bis 320° C.

35

Le A 24 068

5 Die Herstellung von Formkörpern mittels Spritzguß ist bekannt (z.B. E.J. Rubin, Injection Molding Theory and Practice, Wiley Interscience, 1972); geeignete Massetemperaturen liegen bei 250 bis 270°C, bevorzugte Werkzeugtemperaturen bei 80 bis 130°C.

10 Weiterer Gegenstand ist also die Verwendung der erfindungsgemäßen Mischungen zur Herstellung von Formkörpern, vorzugsweise durch Spritzguß.

15 Aus den erfindungsgemäßen Mischungen lassen sich die verschiedensten Gegenstände herstellen, z.B. Vergaserteile, Zündverteiler, Elektrobauteile, Gehäuseteile, Lüftungsgitter, Lampenfassungen.

20

25

30

35

Le A 24 068

Tabelle 1

Le A 24 068

Beisp. Mineralart Menge Schlagzähig- Kerbschlag- Zug-E-Modul Vicat B Biege-E-Modul
(Gew.-X, bez. keil zähigkeil
auf Gesamt- (DIN 53453) (DIN 53455) (DIN 53460) (DIN 53452)
mischung) [kJ/m²] [MPa] [°C] [MPa]

1	unbeschlichtetes Quarzmehl, Teilchendurchmesser: >50 X sind <2,5 µm	20	>100	1,6	3810	171	3440
2		40	83	1,6	5650	193	4860
3	mit Epoxisilan beschlichtetes Quarzmehl; Teilchendurchmesser: >70 X sind <2,5 µm	40	>100	1,6	5710	191	4900
4	mit Aminosilan beschlichtetes Quarzmehl; Teilchendurchmesser: >70 X sind <2,5 µm	40	92	1,6	5770	193	5050
5	mit Epoxisilan beschlichtetes Cristobalitmehl; Teilchendurchmesser: <65 X sind <2,5 µm	40	90	1,6	5900	191	5180

5 Beispiele und Vergleichsversuche

Ein Polybutylenterephthalat mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,93 dl/g und ein Polyethylen terephthalat mit einer Intrinsic-Viskosität von 0,77 dl/g wurden im Gewichtsver-
10 hältnis 60:40 vermischt und bei der Compoundierung auf einem Doppelwellenextruder mit kleinen Mengen Stabilisator, Trennmittel und Kristallisationsbeschleuniger sowie den in Tabelle 1 und 2 angegebenen Mengen verschiedener
15 anorganischer Zuschlagsstoffe versetzt. Zusätzlich sind die Prüfdaten aus den Formmassen hergestellter Probekörper angeführt. Hieraus wird die Überlegenheit der Systeme mit gemahlenem Quarz und Cristobalit ersichtlich.

20

25

30

35

le A 24 068

T a b e l l e 2

Le A 24 068

Vergl. Mineralart Versuch	Menge (Gew.-%, bez. auf Gesamt- mischung)	Schlagzähig- keit (DIN 53453) [kJ/m ²]	Kerbschlag- zähigkeit (DIN 53453) [kJ/m ²]	Zug-E-Modul Vicat B [°C]	Biege-E- Modul (DIN 53452) [MPa]
a Aminosilan-behandeltes calciniertes Kaolin Teilchengröße: 50 % < 2 µm	20	91	1,5	3960	182
b Teilchengröße: 50 % < 2 µm	40	33	1,5	6630	198
c Epoxisilan-behandelter Wollastonit, Teilchen- größe: 63 % < 2,5 µm	40	41	1,6	5870	186
d unbehandeltes Talkum Teilchengröße: 69 % < 2 µm	40	14	1,8	8880	191
e unbehandeltes Novaculit Teilchengröße: 80 % < 5 µm Durchschnittl. TG: 2,7 µm	30	15	6,1	4890	178
f unbehandeltes Novaculit Teilchengröße: 100 % < 5 µm Durchschnittl. TG: 2,7 µm	30	61	2,3	5010	183

5 Patentansprüche:

1. Mischungen aus

- 10 A) 20 bis 80 Gew.-% thermoplastischem Polyester,
B) 5 bis 50 Gew.-% mineralischem Füllstoff,
C) 0 bis 30 Gew.-% eines Acrylat- oder Butadien-
kautschuks,
15 D) 0 bis 30 Gew.-% Glasfasern und
E) 0 bis 10 Gew.-% üblicher Hilfsstoffe,
20 wobei sich die Prozentangaben auf die Summe der Komponenten A bis E beziehen,
dadurch gekennzeichnet, daß der Füllstoff B ein gemahlenes Quarz und/oder ein gemahlener Cristobalit
25 ist, wovon mindestens 50 Gew.-% einen Teilchendurchmesser von höchstens 2,5 µm besitzen.

2. Mischungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß sie 40 bis 75 Gew.-% Komponente A enthalten.
30
3. Mischungen nach Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß sie 20 bis 50 Gew.-% Komponente A enthalten.
35

- 5 4. Mischungen nach Ansprüchen 1-3, dadurch gekennzeichnet, daß sie 10 bis 25 Gew.-% Komponente C enthalten.
- 10 5. Mischungen nach Ansprüchen 1-4, dadurch gekennzeichnet, daß der thermoplastische Polyester aus der Reihe Polyethylenterephthalat, Polybutylenterephthalat, deren Mischungen und Poly(ethylen/butylenterephthalat) ausgewählt ist.
- 15 6. Verfahren zur Herstellung der Mischungen nach Ansprüchen 1 bis 5 durch Mischen der Komponenten bei Temperaturen von 250 bis 320° C.
- 20 7. Verwendung der Mischungen nach Ansprüchen 1-5 zur Herstellung von Formkörpern.

25

30

35

Le A 24 068



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0221338

Nummer der Anmeldung

EP 86 11 3390

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE																	
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)														
D, X	US-A-4 018 738 (H.L.RAWLINGS) * Patentansprüche 1-12; Spalte 3, Zeilen 7-40 *	1-7	C 08 L 67/02 C 08 K 3/36														

X	CHEMICAL ABSTRACTS, Band 85, nr. 18, November 1976, Seite 55, Zusammenfassung nr. 125139p, Columbus, Ohio, US; & JP-A-76 81 849 (TEIJIN) 17. Juli 1976 * Insgesamt *	1-7															

A	PATENTS ABSTRACTS OF JAPAN, Band 7, nr. 108 (C-165)[1253], 11. Mai 1983; & JP-A-58 29 858 (NITTO DENKI) 22-02-1983	1															

A	GUMMI, ASBEST, KUNSTSTOFFE, Band 36, nr. 12, Dezember 1983, Seiten 658-667, A.W.Guntner Verlag, Stuttgart, DE; D.SKUDELNY et al.: "Mineralische Füllstoffe aus Quarz, Cristobalit und Quarzgut" * Seite 658, Absatz 3.3; Seite 663, Absatz 4 - Seite 664 *	1	RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl. 4) C 08 L C 08 K														

D, A	EP-A-0 056 243 (BAYER) * Patentansprüche 1-12; Seite 7, Zeilen 1-8 *	1-7															

Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.																	
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 15-01-1987	Prüfer DECOCKER L.														
<table border="0"><tr><td>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</td><td>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist</td></tr><tr><td>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet</td><td>D : in der Anmeldung angeführtes Dokument</td></tr><tr><td>Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie</td><td>L : aus andern Gründen angeführtes Dokument</td></tr><tr><td>A : technologischer Hintergrund</td><td></td></tr><tr><td>O : nichtschriftliche Offenbarung</td><td></td></tr><tr><td>P : Zwischenliteratur</td><td></td></tr><tr><td>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</td><td>& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</td></tr></table>				KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE	E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet	D : in der Anmeldung angeführtes Dokument	Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie	L : aus andern Gründen angeführtes Dokument	A : technologischer Hintergrund		O : nichtschriftliche Offenbarung		P : Zwischenliteratur		T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze	& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE	E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist																
X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet	D : in der Anmeldung angeführtes Dokument																
Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie	L : aus andern Gründen angeführtes Dokument																
A : technologischer Hintergrund																	
O : nichtschriftliche Offenbarung																	
P : Zwischenliteratur																	
T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze	& : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument																